



GP1745

15

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Group Art Unit : 1733  
Applicants : Kiyokatsu KATO, et al.  
Serial No. : 09/196,683  
Filed : November 20, 1998  
For : METHOD OF MANUFACTURING FUEL CELLS  
AND FUEL CELLS MANUFACTURED BY THE  
METHOD

**RECEIVED**

FEB 19 1999

**GROUP 1700**

Assistant Commissioner for  
Patents  
Washington, D.C. 20231

CLAIM TO CONVENTION PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119

S I R :

A claim to the Convention Priority Date of Japanese Patent Application No. 9-338121, filed in Japan on November 21, 1997 was made at the time this United States application was filed. In order to complete the claim to Convention Priority Date under 35 U.S.C. 119, a certified copy of this Japanese Application is enclosed herewith.

Respectfully submitted,

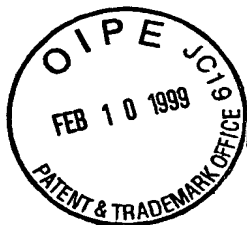
KENYON & KENYON

By Edward W. Gresson  
Edward W. Gresson  
Reg. No. 18,918

One Broadway  
New York, N.Y. 10004  
(212) 425-7200

Dated: February 8, 1999

L:\NY3DOCS\ENG\PU22\60976-1



日本国特許庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application:

1997年11月21日

出願番号  
Application Number:

平成 9年特許願第338121号

出願人  
Applicant(s):

トヨタ自動車株式会社

RECEIVED

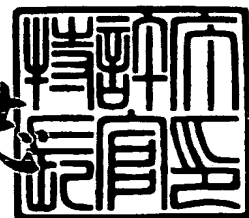
FEB 19 1999

GRNIP 1700

1998年11月13日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

伴佐山 建志



出証番号 出証特平10-3091946

【書類名】 特許願

【整理番号】 PA14C176

【提出日】 平成 9年11月21日

【あて先】 特許庁長官 荒井 寿光 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明の名称】 燃料電池の製造方法

【請求項の数】 6

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 水野 誠司

【特許出願人】

【識別番号】 000003207

【氏名又は名称】 トヨタ自動車株式会社

【代理人】

【識別番号】 100097146

【弁理士】

【氏名又は名称】 下出 隆史

【電話番号】 052-586-3781

【代理人】

【識別番号】 100096817

【弁理士】

【氏名又は名称】 五十嵐 孝雄

【代理人】

【識別番号】 100102750

【弁理士】

【氏名又は名称】 市川 浩

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 007858

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9708410

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子電解質膜からなる電解質層を枠体に固着して燃料電池を製造する燃料電池の製造方法において、

前記固体高分子電解質膜の含水率 ( $H_2O$  のモル分率) を4以下の状態にし、  
前記固体高分子電解質膜と前記枠体とを接着剤を用いて接着すること  
を特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項2】 請求項1に記載の燃料電池の製造方法であって、  
前記接着剤は、  
硬化後の弾性率が10 [MPa] 以下となるもの  
である燃料電池の製造方法。

【請求項3】 請求項1または2に記載の燃料電池の製造方法であって、  
前記接着剤は、  
硬化後の硬さ (デュロメータA) が90以下となるもの  
である燃料電池の製造方法。

【請求項4】 固体高分子電解質膜からなる電解質層を枠体に固着して燃料電池を製造する燃料電池の製造方法において、

硬化後の弾性率が10 [MPa] 以下となる接着剤を用意し、  
前記固体高分子電解質膜と前記枠体とを前記接着剤を用いて接着すること  
を特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項5】 固体高分子電解質膜からなる電解質層を枠体に固着して燃料電池を製造する燃料電池の製造方法において、

硬化後の硬さ (デュロメータA) が90以下となる接着剤を用意し、  
前記固体高分子電解質膜と前記枠体とを前記接着剤を用いて接着すること  
を特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項6】 請求項1ないし5のうちのいずれかに記載の燃料電池の製造方法であって、  
前記枠体が、

前記固体高分子電解質膜と共に設けられたガス拡散電極を挟持するセパレータである、燃料電池の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体高分子電解質膜からなる電解質層をセパレータ等の枠体に固着して燃料電池を製造する燃料電池の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池は、燃料の有するエネルギーを直接に電気エネルギーに変換する装置として知られている。燃料電池の一般的な形態は、電解質層を挟んで一对の電極を配置し、一方の電極（アノード）に水素を含む燃料ガスを、他方の電極（カソード）には酸素を含む酸化ガスを供給するものである。こうした構成の燃料電池では、両極で起こる電気化学反応によって起電力を得る。このような燃料電池では、各電極に供給される燃料ガスと酸化ガスとが混合した場合、発電効率が低下する問題が発生した。したがって、燃料電池では、燃料ガスと酸化ガスとの混合を防ぐことが必要である。

【0003】

固体高分子型燃料電池は、電解質層として固体高分子電解質膜を備える燃料電池である。この固体高分子型燃料電池は、単セルを基本単位としており、通常はこの単セルを積層したスタック構造をとる。単セルでは、固体高分子電解質膜（以下、単に電解質膜と呼んだときも固体高分子電解質膜をさす）を2枚のガス拡散電極が挟持してサンドイッチ構造を形成し、このサンドイッチ構造をガス不透過なセパレータがさらに挟持している。電解質膜は、供給される燃料ガスと酸化ガスとを隔てる役割も果たしており、セパレータは隣接する単セル間でガスが混合するのを防ぐ。従って、固体高分子型燃料電池では、燃料ガスと酸化ガスとの混合を防ぐことを目的として、各単セルの周辺部で、電解質膜とセパレータとの間を接着剤にて接合することにより、電極のガスシール性を確保していた。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、前記従来の技術では、被着体の材質等を考慮して良好と思われる接着剤を選択して燃料電池の製造を行なっても、その接着部分の接着強度（接着強さ）が低いものになってしまうことがある。接着強度が低いと、電極のガスシール性が損なわれることがあることから、電極のガスシーリングの信頼性に乏しい燃料電池が製造されるといった問題が発生した。

【0005】

本発明は、こうした問題に鑑みてなされたもので、固体高分子電解質膜への接着剤の接着強さを高めて、ガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池を製造することを目的としている。

【0006】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】

本発明の第1の燃料電池の製造方法は、

固体高分子電解質膜からなる電解質層を枠体に固着して燃料電池を製造する燃料電池の製造方法において、

前記固体高分子電解質膜の含水率（ $H_2O$  のモル分率）を4以下の状態にし、  
前記固体高分子電解質膜と前記枠体とを接着剤を用いて接着すること  
を要旨とする。

【0007】

上記構成の燃料電池の製造方法によれば、固体高分子電解質膜は、含水率（ $H_2O$  のモル分率）を4以下の状態とした上で、接着剤により枠体に接着される。固体高分子電解質膜は、大気中の湿度により含水率が変化することが知られているが、相対湿度によってはその含水率が急増することがある。燃料電池の製造時に、固体高分子電解質膜の含水率が大きくなると、固体高分子電解質膜の官能基には多量の水分子が吸着されることとなり、このために、固体高分子電解質膜への接着剤による接着強さが低いものとなる。これに対して、上記構成の燃料電池の製造方法によれば、固体高分子電解質膜は、含水率（ $H_2O$  のモル分率）が4以下の状態となるようにしていることから、その官能基に多量の水分子が吸着されることはない。このため、固体高分子電解質膜への接着剤による接着強さは高

いものとなる。

【0008】

したがって、この発明の第1の燃料電池の製造方法によれば、製造時に大気中の湿度が高い場合にも、接着剤による接着強さは十分に高いものとなることから、固体高分子電解質膜と枠体と間のガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池を製造することができる。

【0009】

この発明の第2の燃料電池の製造方法は、

固体高分子電解質膜からなる電解質層を枠体に固着して燃料電池を製造する燃料電池の製造方法において、

硬化後の弾性率が10 [MPa] 以下となる接着剤を用意し、

前記固体高分子電解質膜と前記枠体とを前記接着剤を用いて接着することを要旨とする。

【0010】

上記構成の第2の燃料電池の製造方法によれば、硬化後の弾性率が10 [MPa] 以下となる接着剤により固体高分子電解質膜と枠体とが接着されることから、固体高分子電解質膜と枠体との間の接着剤層が伸縮し易い燃料電池を製造することができる。こうした燃料電池は、接着剤の硬化後の大気中の湿度の変化に伴って固体高分子電解質膜が伸縮した場合にも、その伸縮に接着剤層は追従することが可能となり、固体高分子電解質膜が硬化し破裂したり、あるいは接着剤層が破壊されることがない。

【0011】

したがって、この発明の第2の燃料電池の製造方法によれば、湿度変化が大きいといった使用環境下においても固体高分子電極質膜と枠体との間のガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池を製造することができる。

【0012】

この本発明の第3の燃料電池の製造方法は、

固体高分子電解質膜からなる電解質層を枠体に固着して燃料電池を製造する燃料電池の製造方法において、



硬化後の硬さ（デュロメータA）が90以下となる接着剤を用意し、前記固体高分子電解質膜と前記棒体とを前記接着剤を用いて接着することを要旨とする。

【0013】

この構成の燃料電池の製造方法によれば、硬化後の硬さ（デュロメータA）が90以下となる接着剤により固体高分子電解質膜と棒体とが接着されることから、固体高分子電解質膜と棒体との間の接着剤層が比較的柔らかい状態にある燃料電池を製造することができる。こうした燃料電池は、大気中の湿度の変化に伴って固体高分子電解質膜が伸縮した場合にも、その伸縮に接着剤層は追従することが可能となり、固体高分子電解質膜が硬化し破裂したり、あるいは接着剤層が破壊されることがない。

【0014】

したがって、この発明の第3の燃料電池の製造方法によれば、第2の燃料電池の製造方法と同様に、湿度変化が大きいといった使用環境下においても固体高分子電極質膜と棒体との間のガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池を製造することができる。

【0015】

なお、上記第1の燃料電池の製造方法において、前記接着剤は、硬化後の弾性率が10 [MPa] 以下となるものとすることができる。また、上記第1の燃料電池の製造方法において、前記接着剤は、硬化後の硬さ（デュロメータA）が90以下となるものとすることもできる。

【0016】

これら構成の燃料電池の製造方法によれば、製造時における大気中の湿度が高い場合にも、固体高分子電解質膜と棒体と間のガスシーリングの信頼性に優れ、しかも、その後の湿度変化が大きいといった使用環境下においても、そのガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池を製造することができる。

【0017】

上述した各燃料電池の製造方法において、前記棒体が、前記固体高分子電解質膜と共に設けられたガス拡散電極を挟持するセパレータであることとしてもよい

## 【0018】

この構成の燃料電池の製造方法により製造される燃料電池では、固体高分子電解質膜の両面に設けられたガス拡散電極に供給される燃料ガスおよび酸化ガスは、固体高分子電解質膜によって分かれている。さらに、燃料ガスおよび酸化ガスは、電解質膜と反対側にあつてはそれぞれセパレータによってシールされている。しかも、この燃料電池では、固体高分子電解質膜とセパレータとの間のガスシーリングの信頼性は高い。したがって、Ｏリングなどの部材を別途用意することなく、ガス拡散電極のガスシーリングを確実なものとすることができる。

## 【0019】

## 【発明の実施の形態】

以上説明した本発明の構成・作用を一層明らかにするために、以下本発明の実施の形態を実施例に基づき説明する。本発明の好適な一実施例である燃料電池の製造方法を採用して製造される燃料電池10は、単セル20を基本単位としており、単セル20を積層したスタック構造を有している。図1は、この単セル20の断面を模式的に表わす説明図である。燃料電池10の基本単位である単セル20は、固体高分子電解質膜（以下、単に電解質膜と呼ぶ）21と、アノード22およびカソード23と、セパレータ24、25とから構成されている。

## 【0020】

アノード22およびカソード23は、電解質膜21を両側から挟んでサンドイッチ構造を成すガス拡散電極である。セパレータ24および25は、このサンドイッチ構造をさらに両側から挟みつつ、アノード22およびカソード23との間に、燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成する。アノード22とセパレータ24との間には燃料ガス流路24Pが形成されており、カソード23とセパレータ25との間には酸化ガス流路25Pが形成されている。

## 【0021】

セパレータ24、25は、図1ではそれぞれ片面にのみ流路を形成しているが、実際にはその両面にリブが形成されており、片面はアノード22との間で燃料ガス流路24Pを形成し、他面は隣接する単セルが備えるカソード23との間で

酸化ガス流路25Pを形成する。このように、セパレータ24、25は、ガス拡散電極との間でガス流路を形成するとともに、隣接する単セル間で燃料ガスと酸化ガスの流れを分離する役割を果たしている。もとより、単セル20を積層してスタック構造を形成する際、スタック構造の両端に位置する2枚のセパレータは、ガス拡散電極と接する片面にだけリブが形成されている。

#### 【0022】

ここで、電解質膜21は、固体高分子材料、例えばフッ素系樹脂により形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜であり、湿潤状態で良好な電気伝導性を示す。本実施例では、ナフィオン膜（デュポン社製）を使用した。電解質膜21の表面には、触媒としての白金または白金と他の金属からなる合金が塗布されている。触媒を塗布する方法としては、白金または白金と他の金属からなる合金を担持したカーボン粉を作製し、この触媒を担持したカーボン粉を適当な有機溶剤に分散させ、電解質溶液を適量添加してペースト化し、電解質膜21上にスクリーン印刷するという方法をとる。

#### 【0023】

白金触媒を担持したカーボン粉は次のような方法で作製されている。まず、塩化白金酸水溶液とチオ硫酸ナトリウムとを混合して、亜硫酸白金錯体の水溶液を得、この水溶液を攪拌しながら、過酸化水素水を滴下して、水溶液中にコロイド状の白金粒子を析出させる。次にこの水溶液に担体となるカーボンブラック〔例えばVulcan XC-72（米国のCABOT社の商標）やデнкаブラック（電気化学工業株式会社の商標）〕を添加しながら、攪拌し、カーボンブラックの表面にコロイド状の白金粒子を付着させる。

#### 【0024】

そして吸引ろ過または加圧ろ過により白金粒子が付着したカーボンブラックを水溶液中から分離し、脱イオン水で繰り返し洗浄した後、室温で完全に乾燥させる。次に、この乾燥の工程で凝集したカーボンブラックを粉碎機で粉碎し、水素還元雰囲気中で、250℃～350℃で2時間程度加熱して、カーボンブラック上の白金を還元すると共に、残留していた塩素を完全に除去して、白金触媒を担持したカーボン粉を完成する。

【0025】

カーボンブラックへの白金の担持密度（カーボンの重量に対するカーボン上の白金の重量の比率）は、塩化白金酸の量とカーボンブラックの量との比率を変えることにより調節することができ、任意の担持密度の白金触媒を得ることができる。なお、白金触媒の製造方法は、前述の方法に限らず、十分な触媒活性が得られる方法であれば、他の方法により製造したものであってもよい。

【0026】

以上の説明では、白金を触媒として用いる場合について述べたが、この他にも、第1成分である白金と、第2成分であるルテニウム、ニッケル、コバルト、インジウム、鉄、クロム、マンガン等のうちの1種類あるいは2種類以上の成分との合金からなる合金触媒を使用することもできる。

【0027】

アノード22およびカソード23は、共に炭素繊維からなる糸で織成したカーボクロスにより形成されている。なお、本実施例では、アノード22およびカソード23をカーボクロスにより形成したが、炭素繊維からなるカーボンペーパーまたはカーボンフェルトにより形成する構成も好適である。

【0028】

上記電解質膜21とアノード22およびカソード23とは、熱圧着により一体化される。すなわち、白金などの触媒を塗布した電解質膜21をアノード22およびカソード23で挟持し、120～130℃に加熱しながらこれらを圧着する。電解質膜21とアノード22およびカソード23とを一体化する方法としては、熱圧着による他に、接着による方法を用いてもよい。アノード22およびカソード23で電解質膜21を挟持する際、各電極と電解質膜21との間をプロトン導電性固体高分子溶液（例えば、Aldrich Chemical社、Nafion Solution）を用いて接合すれば、プロトン導電性固体高分子溶液が固化する過程で接着剤として働き、各電極と電解質膜21とが固着される。

【0029】

セパレータ24、25は、ガス不透過の導電性部材、例えば、カーボンを圧縮してガス不透過とした緻密質カーボンにより形成されている。セパレータ24、

25はその両面に、平行に配置された複数のリブを形成しており、既述したように、アノード22の表面とで燃料ガス流路24Pを形成し、隣接する単セルのカソード23の表面とで酸化ガス流路25Pを形成する。ここで、各セパレータの表面に形成されたリブは、両面ともに平行に形成する必要はなく、面毎に直交するなど所定の角度をなすこととしてもよい。また、リブの形状は平行な溝状である必要はなく、ガス拡散電極に対して燃料ガスまたは酸化ガスを供給可能であればよい。

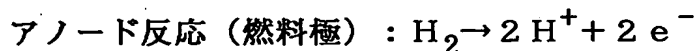
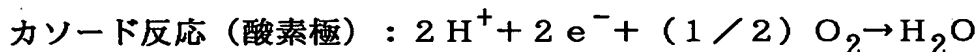
#### 【0030】

次に、セパレータ24、25と、電解質膜21との接続部について説明する。図2は、単セル20の端部の断面図であり、接続部の構成を示す。電解質膜21と、セパレータ24および25との間の接続は、接着剤を用いてなされる。即ち、セパレータ24、25において、電解質膜21との接続部に対応する領域に接着剤を塗布したうえで、単セル20を組み立てることにより、図2に示すように電解質膜においてガス拡散電極からはみ出した部分を覆って接着剤層29が形成され、接続部が完成する。

#### 【0031】

上記構成の単セル20は、水素を含む燃料ガスをアノード22とセパレータ24との間の燃料ガス流路24Pに、酸素を含む酸化ガスをカソード23とセパレータ25との間の酸化ガス流路25Pにそれぞれ流すことにより、アノード22とカソード23とで、次式に示す電気化学反応が行なわれ、化学エネルギーが直接電気エネルギーに変換される。

#### 【0032】



#### 【0033】

以上、燃料電池10の基本構造である単セル20の構成について説明した。実際に燃料電池10として組み立てるときには、セパレータ24、アノード22、電解質膜21、カソード23、セパレータ25をこの順序で複数組積層し（本実施例では100組）、その両端に緻密質カーボンや銅板などにより形成される集

電板（図示せず）を配置することによって、スタック構造を構成する。

【0034】

単セル20の組立の様子について、既に大方説明したが、さらに図3に基づき説明する。まず、電解質膜21をアノード22およびカソード23で挟んでサンドイッチ構造とした状態で、120～130〔℃〕の温度で、8000～12000〔KPa〕の圧力を作用して接合するホットプレス法により接合する（ステップS100）。

【0035】

次いで、25〔℃〕の温度、50〔％〕の湿度（相対湿度：以下、単に湿度というときは相対湿度をさす）の雰囲気下に、上記アノード22およびカソード23が接合された電解質膜21を、1時間以上さらす処理を行なう（ステップS110）。なお、ここでは上記雰囲気の湿度は50〔％〕としたが、必ずしも50〔％〕である必要はなく、これに替えて、50〔％〕より低い所定の値としてもよい。

【0036】

続いて、セパレータ24、25を用意して、そのセパレータ24、25において、電解質膜21との接続部に対応する領域に接続剤を塗布する（ステップS120）。ここで用いる接着剤は、エポキシ樹脂と変性シリコンとを混合したゴム変性接着剤で、硬化後の弾性率が10〔MPa〕以下、好ましくは5〔MPa〕以下であり、硬化後の硬さ（デュロメータA）が90以下、好ましくは80以下である特性をもつものである。さらに、この接着剤には、接着剤の厚さを管理するための直径50〔μm〕の樹脂ビーズが2〔％〕添加されている。

【0037】

その後、アノード22およびカソード23が接合された電解質膜21にセパレータ24、25を積層することにより単セル20を組み立てる（ステップS130）。この結果、図2に示すように電解質膜21においてアノード22およびカソード23からはみ出した部分を覆って接着剤層29が形成されることになるが、その後、その組み立てた単セル20を室温で3日間放置して、接着剤層29を硬化させる（ステップS140）。こうして、単セル20が完成する。

## 【0038】

上記単セル20において電解質膜21とセパレータ24, 25との間の接着強さを評価するために接着強さ試験を行なったので、その接着強さ試験について、次に説明する。ここでは、接着強さ試験を行なうに先立ち、試験片として次のようなものを準備した。

## 【0039】

まず、電解質膜として、デュポン社製のNafion115 (EW1100 [g/mol]) を用意し、温度を25 [°C]、湿度を約0 [%] に保った雰囲気下にそのNafion115の電解質膜を1時間以上さらす。続いて、その雰囲気下の湿度を0から100 [%] まで、10 [%] 毎に順に変えていき、各湿度の雰囲気下に、同様の条件で電解質膜をそれぞれさらすことを行なう。こうして、含水率 $\lambda$ の異なる複数の電解質膜を試験片として準備する。

## 【0040】

なお、準備した各電解質膜毎に、その電解質膜にさらした雰囲気中の相対湿度Hと電解質膜の含水率 $\lambda$ との関係を調べた。その結果を図4に示した。図4から明らかなように、相対湿度Hの増大に比例して、含水率 $\lambda$ は徐々に大きくなるが、特に相対湿度Hが60 [%] を過ぎた辺りから急上昇する。なお、図4に示した含水率 $\lambda$ の値はH<sub>2</sub>O のモル分率により表わしている。

## 【0041】

その後、含水率 $\lambda$ の異なる各電解質膜を用いて接着強さ試験を行なう。この接着強さ試験の方法は次のようなものである。セパレータ24, 25と同じ素材であるカーボン板を用意し、そのカーボン板に、上記実施例で電解質膜21とセパレータ24, 25との接着に使用したと同じ接着剤を塗布し(50 [μm] の樹脂ビーズを用いて接着剤層の厚さも実施例と同一とした)、その接着剤表面に上記電解質膜を接合する。その後、そのカーボン板と電解質膜との接合体を、上記実施例と同様に室温で3日間放置することにより、接着剤部分を硬化させる。こうして得られた接合体に対して、いわゆる180度剥離接着強さ試験を行なう。

## 【0042】

図5は、180度剥離接着強さ試験の方法を示す説明図である。図示するよう

に、この試験は、電解質膜Eを180度逆方向にたわませて、図示しない試験機により矢印X方向に引っ張りの応力をかけることにより行なうもので、接着剤層Bが破壊されてカーボン板Cから電解質膜Eが剥離されるときに応力（剥離強度）を測定する。

【0043】

この180度剥離接着強さ試験を、含水率λの相違する各電解質膜毎に行ない、電解質膜の含水率λと剥離強度との関係を調べた。その結果を図6に示す。図6から明らかなように、電解質膜の含水率λがほぼ値6より小さくなると、剥離強度は急激に大きくなり、含水率λが値4以下となると、剥離強度は0.6[kg/cm]以上となる。剥離強度が、0.3~0.4[kg/cm]以下では、ガスリークが発生し、信頼性に欠けたものとなるが、0.6[kg/cm]以上の剥離強度となると、ガスリークは発生せず、信頼性の高いものとなる。

【0044】

即ち、電解質膜の含水率λが値4以下（重量比で8[%]以下）であるなら、電解質膜のカーボン材料への接着強さは十分なものとなることがわかる。この含水率λが値4以下といった大きさは、図4に照らし合わせると、50[%]以下の相対湿度Hの雰囲気下で実現できることがわかる。

【0045】

これに対して上記実施例では、50[%]、もしくは50[%]より低い湿度の雰囲気下に電解質膜21をさらしていることから、上記試験結果に照らし合わせてみると、電解質膜21の含水率λは値4以下となり、燃料電池10における電解質膜21とセパレータ24、25との間の接着強さは十分なものとなる。

【0046】

この結果、この実施例の燃料電池の製造方法により製造される燃料電池10は、電解質膜21とセパレータ24、25との間のガスシーリングの信頼性に優れたものとなる。特に、この実施例では、製造時の大気の湿度が50[%]を越える高湿度の場合にも、大気中の湿度の影響を受けることが少なく、電解質膜21とセパレータ24、25との間のガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池10を製造することができる。



## 【0047】

また、上記実施例では、電解質膜21とセパレータ24, 25とを接着する接着剤として、硬化後の弾性率が10 [MPa] 以下、好ましくは5 [MPa] 以下であり、かつ、硬化後の硬さ（デュロメータA）が90以下、好ましくは80以下である特性をもつ接着剤を用いていたが、この接着剤の弾性率および硬さ（以下、弾性率および硬さは、硬化後の弾性率および硬さを示す）は、接着強さにどのような影響をもたらすかについて、次に説明する。

## 【0048】

まず、接着剤を構成するエポキシ樹脂と変性シリコンとの配合比を調整することによって、弾性率の異なる複数の接着剤を用意する。なお、その配合比（変性シリコン／エポキシ樹脂）を大きくしていくと、弾性率は小さくなる。そしてそれぞれの接着剤により接着した電解質膜Eとカーボン板Cとの接合体に対して、前述した180度剥離接着強さ試験を行なう。こうして測定した剥離強度と弾性率との関係を示したのが、図7のグラフである。

## 【0049】

図7から明らかなように、接着剤の弾性率が20 [MPa] より小さくなると、剥離強度は急激に大きくなり、弾性率が10 [MPa] 以下となると、剥離強度は0.5 [kg/cm] より大きくなる。さらに、弾性率が5 [MPa] 以下となると、剥離強度は0.7~0.8 [kg/cm] といった最大に近い値となる。前述したように、この剥離強度が0.5 [kg/cm] 以上といった値は、ガスリークは発生せず、ガスシーリングの信頼性を高める値である。

## 【0050】

これに対して、上記実施例で用いられる接着剤は、硬化後の弾性率が10 [MPa] 以下、好ましくは5 [MPa] 以下である特性をもつものであることから、燃料電池10における電解質膜21とセパレータ24, 25との間の接着強さは、十分なものであることがわかる。

## 【0051】

また、接着剤の硬さについても試験を行なったので、次に説明する。まず、接着剤を構成するエポキシ樹脂と変性シリコンとの配合比を調整することによって

、硬さの異なる複数の接着剤を用意する。なお、その配合比（変性シリコン／エポキシ樹脂）を大きくしていくと、硬さは小さくなる。そしてそれぞれの接着剤により接着した電解質膜Eとカーボン板Cとの接合体に対して、前述した180度剥離接着強さ試験を行なう。こうして測定した剥離強度と硬さとの関係を示したのが、図8のグラフである。

## 【0052】

図8から明らかなように、接着剤の硬さ（デュロメータA）が90以下となると、剥離強度は急激に大きくなり、0.5[kg/cm]以上の値となる。さらに、接着剤の硬さ（デュロメータA）が80以下となると、剥離強度は0.7～0.8[kg/cm]といった最大に近い値となる。前述したように、この剥離強度が0.5[kg/cm]以上といった値は、ガスリークは発生せず、ガスシーリングの信頼性を高める値である。

## 【0053】

これに対して、上記実施例で用いられる接着剤は、硬化後の硬さ（デュロメータA）が90以下、好ましくは80以下である特性をもつものであることから、燃料電池10における電解質膜21とセパレータ24、25との間の接着強さは、十分なものであることがわかる。

## 【0054】

即ち、この実施例による燃料電池10は、上述した接着剤の弾性率についての条件と硬さについての条件との双方を満たすことから、電解質膜21とセパレータ24、25との間の接着強さは十分なものとなる。このことは、前述したように試験により確かめられたが、その理由は次のようなものである。上記弾性率の条件あるいは硬さの条件を満たすということは、接着剤層が硬化後においても伸縮し易い状態にあるということである。このため、引っ張りの応力が加えられて固体高分子電解質膜が伸ばされた場合にも、その伸張に接着剤層は追従することが可能となり、固体高分子電解質膜が硬化し破裂したり、あるいは接着剤層が破壊されることがないためである。

## 【0055】

したがって、この実施例によれば、電解質膜21とセパレータ24、25との

間の剥離強度が高いことから、湿度変化が大きいといった使用環境下においてもガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池を製造することができる。特に、この実施例では、前述したように製造時に湿度が高い場合にも、ガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池10を製造することができることから、製造時およびその後の使用環境下において、ガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池10を製造することができるといえる。

## 【0056】

なお、前記実施例では、接着剤の弾性率についての条件と硬さについての条件との双方を満たす構成としたが、いずれか一方を満たす構成としても、電解質膜21とセパレータ24、25との間の接着強さは十分なもので、ガスシーリングの信頼性が高い。また、製造時における電解質膜の含水率 $\lambda$ を調整する工程を除いて、上記接着剤の弾性率あるいは硬さだけを着目して、燃料電池を製造する構成とすることも可能である。

## 【0057】

また、前記実施例では、電解質膜21とセパレータ24、25とを接着する接着剤として、エポキシ樹脂と変性シリコンとを混合したゴム変性接着剤を用いていたが、これに替えて、他の種類の接着剤を用いた構成としてもよく、この場合の接着剤も、前述した実施例と同様に、弾性率が10 [MPa] 以下に、硬さ（デュロメータA）が90以下、好ましくは80以下である特性をもつものとする。

## 【0058】

以上本発明の実施例について説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、例えば、電解質膜と枠体とを接着する接着剤を、上記実施例の構成に替えて、接着剤の厚さを管理するための樹脂ビーズを含まないものとした構成等、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々なる状態で実施し得ることは勿論である。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図1】

本発明の好適な一実施例である燃料電池10を構成する単セル20の構造を模

式的に表わす断面図である。

【図2】

単セル20でガスシールを実現する接続部の構成を示す断面図である。

【図3】

単セルの製造方法を示すフローチャートである。

【図4】

電解質膜にさらした雰囲気の相対湿度Hと電解質膜の含水率 $\lambda$ との関係を示すグラフである。

【図5】

180度剥離接着強さ試験の方法を示す説明図である。

【図6】

電解質膜の含水率 $\lambda$ と剥離強度との関係を示すグラフである。

【図7】

接着剤の弾性率と剥離強度との関係を示すグラフである。

【図8】

接着剤の硬さと剥離強度との関係を示すグラフである。

【符号の説明】

10…燃料電池

20…単セル

21…電解質膜

22…アノード

23…カソード

24, 25…セパレータ

24P…燃料ガス流路

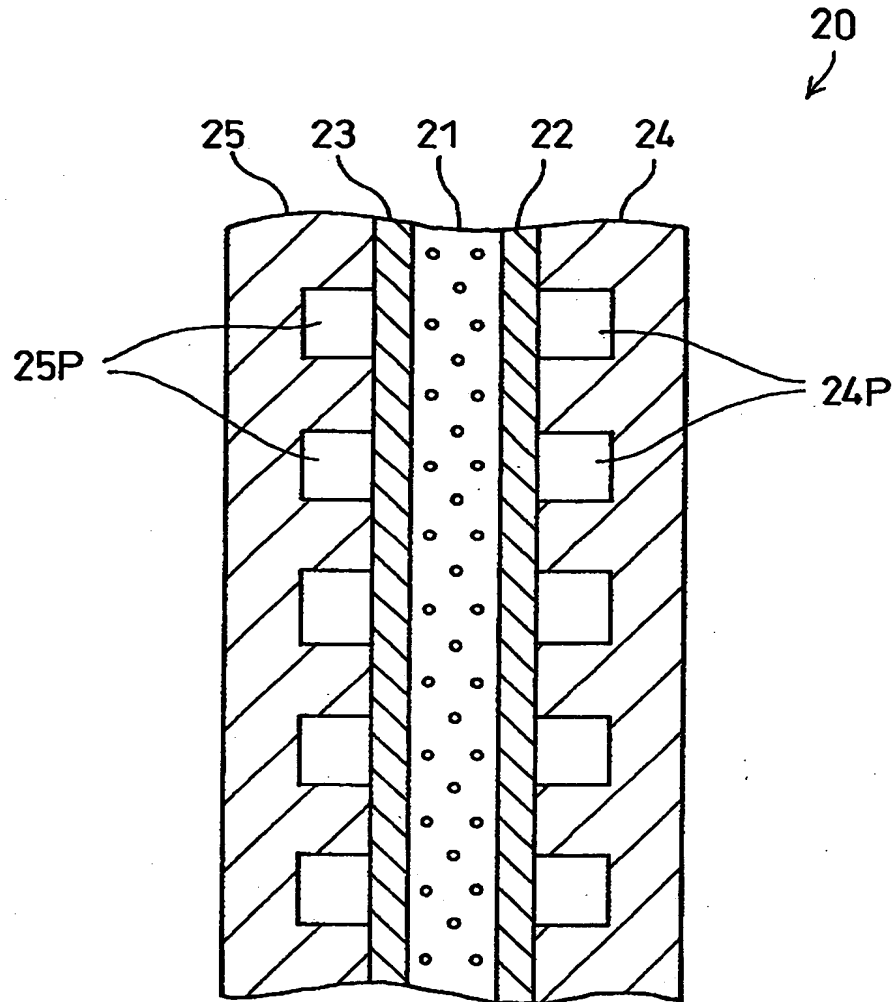
25P…酸化ガス流路

29…接着剤層

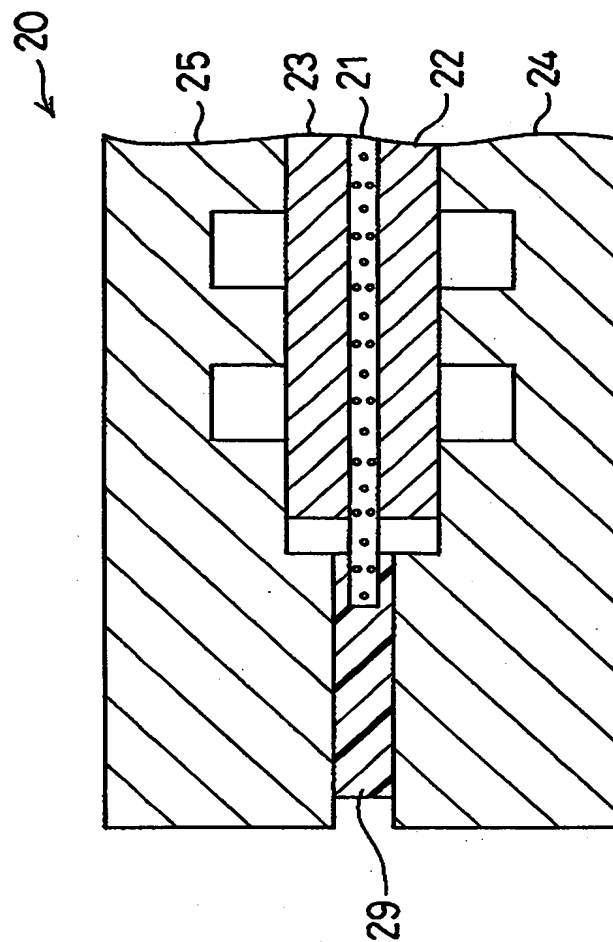
【書類名】

図面

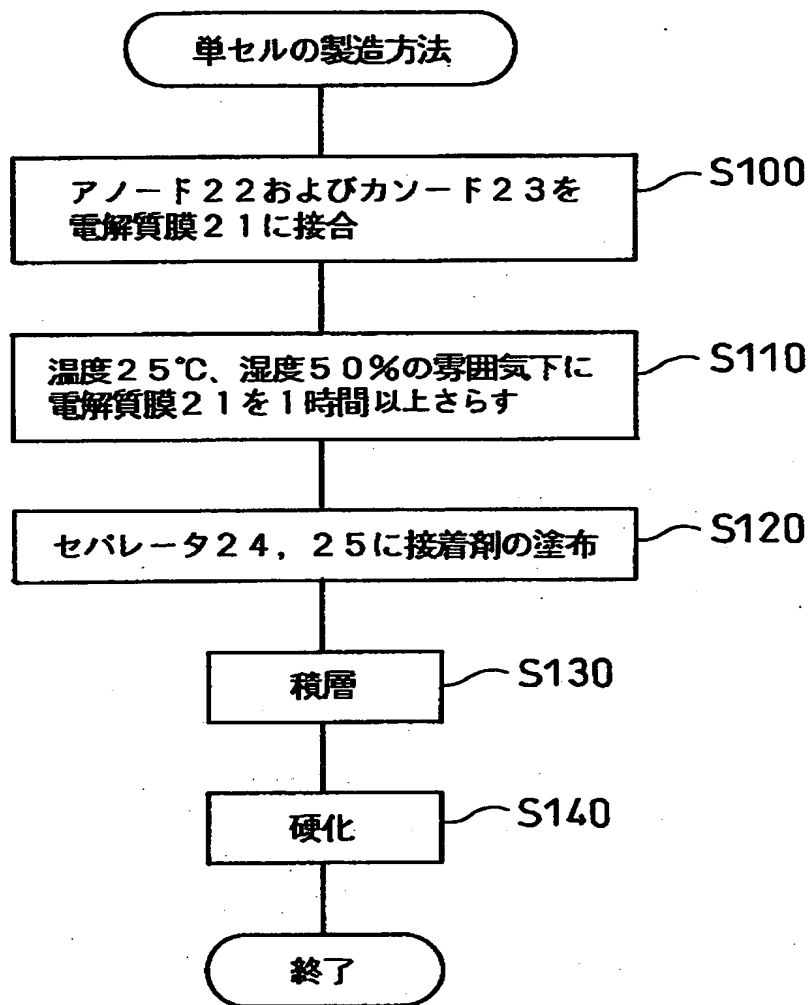
【図1】



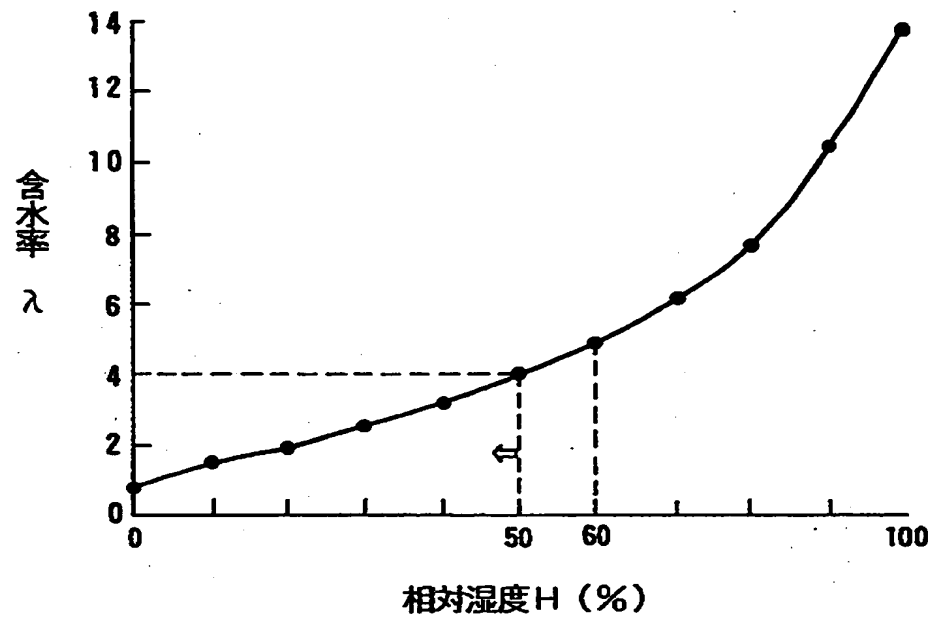
【図2】



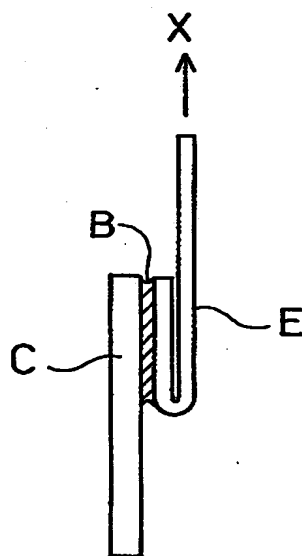
【図3】



【図4】

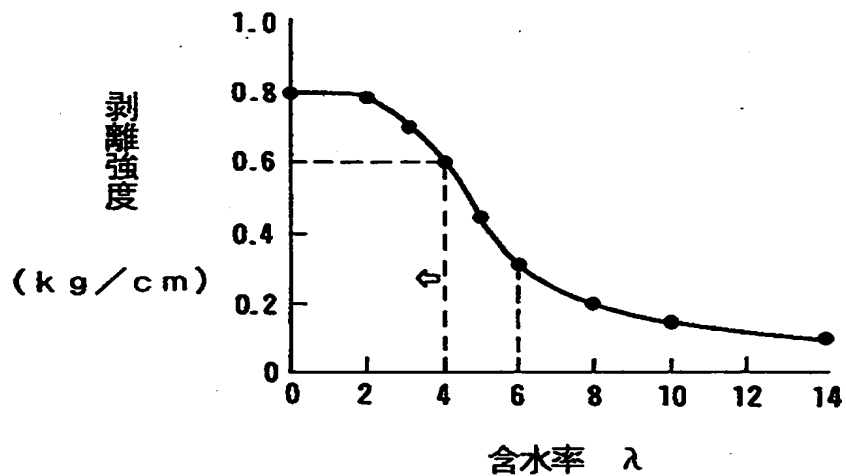


【図5】

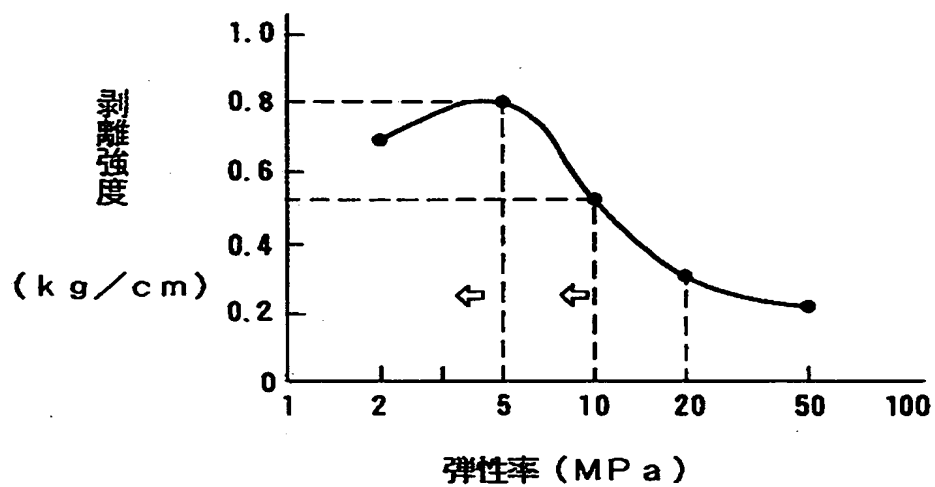




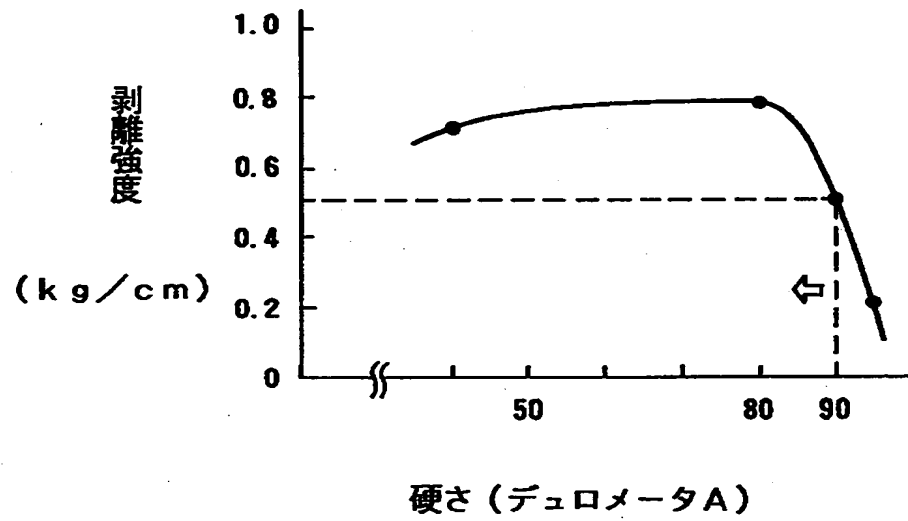
【図6】



【図7】



【図8】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 固体高分子電解質膜への接着剤の接着強さを高めて、ガスシーリングの信頼性に優れた燃料電池を製造する。

【解決手段】 電解質膜をアノードおよびカソードで挟んで接合した接合体を、25 [℃] の温度、50 [%] の湿度の雰囲気下に1時間以上さらす (S110)。続いて、セパレータを用意して、そのセパレータにおいて電解質膜との接続部に対応する領域に接続剤を塗布する (S120)。接着剤は、エポキシ樹脂と変性シリコンとを混合したゴム変性接着剤で、硬化後の弾性率が10 [MPa] 以下、硬さ (デュロメータA) が90以下である特性をもつものである。その後、電解質膜にセパレータを積層して硬化させる (S130, 140)。上記S110の工程により、電解質膜の含水率 $\lambda$ は値4以下となり、その電解質膜への接着剤による接着強さは高いものとなる。

【選択図】 図3

【書類名】 職権訂正データ  
【訂正書類】 特許願

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】 000003207  
【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地  
【氏名又は名称】 トヨタ自動車株式会社

【代理人】 申請人

【識別番号】 100097146  
【住所又は居所】 名古屋市中村区名駅5丁目5番22号 名駅DHビル7階 明成国際特許事務所

【氏名又は名称】 下出 隆史

【代理人】 申請人

【識別番号】 100096817  
【住所又は居所】 名古屋市中村区名駅5丁目5番22号 名駅DHビル7階 明成国際特許事務所

【氏名又は名称】 五十嵐 孝雄

【代理人】 申請人

【識別番号】 100102750  
【住所又は居所】 名古屋市中村区名駅5丁目5番22号 名駅DHビル7階 明成国際特許事務所

【氏名又は名称】 市川 浩

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003207]

1. 変更年月日	1990年 8月27日
[変更理由]	新規登録
住 所	愛知県豊田市トヨタ町1番地
氏 名	トヨタ自動車株式会社